

PAT-NO: JP360074354A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 60074354 A

TITLE: GAS-DIFFUSING ELECTRODE FOR FUEL CELL

PUBN-DATE: April 26, 1985

INVENTOR-INFORMATION:

NAME

TAJIMA, HIROYUKI

SAKURAI, MASAHIRO

ENOMOTO, HIROBUMI

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME

COUNTRY

FUJI ELECTRIC CORP RES & DEV LTD

N/A

FUJI ELECTRIC CO LTD

N/A

APPL-NO: JP58183481

APPL-DATE: September 30, 1983

INT-CL (IPC): H01M004/86

US-CL-CURRENT: 429/40

ABSTRACT:

PURPOSE: To achieve both high water repellent property and gas diffusion by enabling a great amount of fluorine resin to be used in a water repellent layer by impregnating an electrode base material with two kinds of fluorine resins having different melting points before the thus obtained body is sintered at a temperature corresponding to the melting point of the low melting fluorine resin.

CONSTITUTION: After an electrode base material 1 is impregnated with two

kinds of fluorine resins 5 and 6 having different melting points, the thus obtained body is sintered at a temperature of around 290°C at which the low melting fluorine resin 6 melts. As a result, the high melting fluorine resin 5 remains unmolten in the electrode base material 1 and only the low melting fluorine resin 6 melts and is solidified thereby being attached to carbon fiber 1 and the high melting fluorine resin 5, thereby enabling the area (A) to be made water repellent. Furthermore, proper spaces are formed in the electrode base material 1 due to the high melting fluorine resin 5 remaining unmolten in the material 1, thereby achieving a good gas permeability while maintaining a high water repellent property.

COPYRIGHT: (C)1985,JPO&Japio

⑫ 公開特許公報(A)

昭60-74354

⑬ Int.Cl.⁴

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 昭和60年(1985)4月26日

H 01 M 4/86

H-7268-5H

審査請求 未請求 発明の数 1 (全4頁)

⑮ 発明の名称 燃料電池のガス拡散電極

⑯ 特 願 昭58-183481

⑰ 出 願 昭58(1983)9月30日

⑱ 発 明 者 田 島 博 之 横須賀市長坂2丁目2番1号 株式会社富士電機総合研究所内
 ⑲ 発 明 者 桜 井 正 博 横須賀市長坂2丁目2番1号 株式会社富士電機総合研究所内
 ⑳ 発 明 者 榎 本 博 文 横須賀市長坂2丁目2番1号 株式会社富士電機総合研究所内
 ㉑ 出 願 人 株式会社富士電機総合研究所 横須賀市長坂2丁目2番1号
 ㉒ 出 願 人 富士電機株式会社 川崎市川崎区田辺新田1番1号
 ㉓ 代 理 人 弁理士 山 口 巖

明 細 書

1. 発明の名称 燃料電池のガス拡散電極

2. 特許請求の範囲

1) 融点の異なる二種類の弗素樹脂を含み、前記弗素樹脂のうちの低融点弗素樹脂の熔融温度で焼成することにより形成され、高融点弗素樹脂を未熔融のまま残存させた撥水性をもつ電極基板と、該基板上に設けられる触媒層とからなることを特徴とする燃料電池のガス拡散電極。

3. 発明の詳細な説明

〔発明の属する技術分野〕

本発明は燃料電池のガス拡散電極の改良に関する。

〔従来技術とその問題点〕

一般に磷酸型燃料電池に用いられるマトリックスを挟持したガス拡散電極は、反応ガスを内部に拡散させる多孔質カーボン板からなる電極基材に、マトリックスに保持された磷酸電解液が電極外部にまで漏洩するのを防ぐための撥水層、および電気化学反応を行わせるための触媒を担持した触媒

層とを備えている。このガス拡散電極の構成を微視的組織として部分的な縦断面図で示すと第1図のようになっている。

第1図においてA領域は電極基材の一部であり、耐熱性、耐電解液腐食性、耐酸化性および電気伝導性を有するカーボン繊維1などからなる多孔質カーボン板である。B領域は撥水層であり、電極基材上にカーボン粉末2と弗素樹脂3の混合分散液をスクリーン印刷もしくは噴霧法などにより、均一な薄膜として塗布し、乾燥した後弗素樹脂3の熔融温度で焼成したものである。C領域は触媒を担持したカーボン粉末4からなる触媒層である。第1図のような組織と構造を有する従来の燃料電池は、長期間にわたって運転を続けると、撥水層の撥水性が十分でない場合マトリックスからの電解液が浸透して電極基材に漏洩し、ガスの拡散を妨げ、燃料電池の性能を低下させるという欠点があつた。これに対して、撥水層の撥水性をより高めるための手段として、カーボン粉末2に弗素樹脂3をさらに多量に添加すればよいことは明らか

であるが、弗素樹脂を過度に添加すると、カーボン粉末2と均一に混合分散せず、その結果弗素樹脂3のみ凝集して塊状となる部分を生じ、撥水層が均一な薄膜として得られないばかりか、弗素樹脂3が凝集し偏在することにより、ピンホールが発生するので、電解液はこのピンホールを通つて漏洩し、ガス側の電極基材に付着してガスの拡散を阻害し燃料電池の寿命を短かくするという問題を起こす。したがつて、撥水層には無作為に多量の弗素樹脂を用いることはできない。

〔発明の目的〕

本発明の目的は上述の欠点を除去し、撥水層に多量の弗素樹脂を用いることを可能として、高い撥水性とガス拡散性能とを兼備した燃料電池のガス拡散電極を提供することにある。

〔発明の要点〕

本発明は融点の異なる二種類の弗素樹脂を電極基材に含ませ、低融点弗素樹脂の熔融温度で焼成し、高融点弗素樹脂は未熔融のまま残存させることにより達成される。

融してしまふと、弗素樹脂の体積が収縮して電極基材のすきまを埋めてしまふためガス透過性が悪くなる。したがつて本発明では融点の異なる二種類の弗素樹脂を電極基材に含浸させ、低融点弗素樹脂の熔融温度で焼成し、高融点弗素樹脂は未熔融のまま残存させて電極基材に適度のすきまをもたせることにより、高い撥水性を維持したまま良好なガス透過性を得ている。また逆に、電極基材に高融点の弗素樹脂だけを含浸させたのでは、基材と弗素樹脂との間に結着性がないため弗素樹脂だけが凝集して偏在してしまい、良好な撥水性が得られない。したがつて電極基材に含浸される弗素樹脂は適度の結着性を有していることが肝要である。

再び本文に戻り、電極基材1に融点の異なる二種類の弗素樹脂5, 6を含浸させた後、低融点弗素樹脂が熔融する290℃附近の温度で焼成すると第3図のごとくなり、高融点弗素樹脂5は電極基材中に未熔融のまま残存し、低融点弗素樹脂6のみが熔融凝固して、カーボン繊維1および高融点

〔発明の実施例〕

以下本発明を実施例に基づき説明する。

従来四弗化エチレン樹脂などの320～330℃の融点を有する弗素樹脂を単独に用いていたのに対し、本発明では、さらにこれに260～290℃で熔融する四弗化エチレン・六弗化プロピレン共重合樹脂を10～30重量%含む融点の異なる二種類の弗素樹脂の均一な分散混合液を、電極基材1にスクリーン印刷、噴霧法などにより塗布した後吸引して電極基材1中に含浸させ乾燥する。第2図はこの状態を示したものであり、第1図と同一符号は同一名称で表わしてあるがカーボン繊維1などからなる電極基材1の一部A領域に高融点弗素樹脂5と低融点弗素樹脂6が含まれている。このように組織的に形成された電極基材に弗素樹脂を含浸することにより、弗素樹脂が凝集して塊状となり偏在するという不都合が生じないから撥水性が必要十分な量の弗素樹脂を用いることができる。

しかしながら、ただ単に電極基材に撥水性を得るに十分な弗素樹脂を含浸させ、これをすべて溶

弗素樹脂6と結合し、領域Aに撥水性をもたせることができる。また本発明によるもう一つの特徴は、従来のガス拡散電極が第1図のようにカーボン粉末と弗素樹脂の結合からなる独立した撥水層を形成しているのに対し、本発明による第3図では電極基材中に撥水性を高めた層を電極基材の一部として内蔵しているので、電極を構成する層の数が一つ減り、それだけ電気抵抗が低減するということである。すなわち本発明により、電極基材と撥水層を一体としたガス拡散電極が得られ、しかも高融点弗素樹脂が未熔融のまま残存するため、ガス拡散性を損うことなく、高い撥水性を維持できる。

次に本発明の方法と従来方法により得られた電極構造を有する燃料電池の単セルについて、それぞれ撥水性とガス拡散性とを比較した結果を第1表に示す。



第1表の比較から本発明のガス拡散電極の方が

第 1 表

	焼 水 性		ガス拡散性
	耐磷酸液圧性	磷酸透過性	ガス透過性
本発明の電極	1000mm H ₃ PO ₄ 液圧で液もれなし	200℃, 300mm H ₃ PO ₄ 液圧で5000Hr液もれなし	200L/Hr/mm H ₂ O
従来の電極	500mm H ₃ PO ₄ 液圧で液もれ	200℃, 300mm H ₃ PO ₄ 液圧で1500Hrで液もれ	150L/Hr/mm H ₂ O

勝ることは明らかである。

また第4図は同じく本発明および従来の電極構造を有する燃料電池の運転に際して、単セル電圧の経時変化を示したものであり、曲線イは本発明による単セル電圧特性、曲線ロは従来の単セル電圧特性を表わしている。曲線イと曲線ロを比較すれば明らかなように、従来の電極構造の電池が2000時間の運転時間を超えると著しく性能が低下するのに対し、本発明の電極基材をもつ電池では7500時間の長期間運転にもかかわらず、ほとんど性能低下が認められない。本発明による電極

構造は、独立して存在する撥水層をもっていないことが従来方法のものと異なり、そのために電池の電気抵抗が低く、電圧損失が小さいという利点があり、このことが第4図の曲線イと曲線ロの初期電圧の違いを表わしている。

〔発明の効果〕

以上説明したごとく、本発明の方法によれば、ガス拡散電極の基材に、カーボン粉末を弗素樹脂で結合した撥水層を独立に存在する領域として設けることなく、電極基材に一体となつて必要十分な量の弗素樹脂を含む撥水層を形成してあるので、従来のように、カーボン粉末と多量の弗素樹脂との混合に起因するピンホールなどの欠陥の発生もあり得ない。本発明で用いる融点の異なる二種類の弗素樹脂のうち、高融点弗素樹脂は未溶解のまま電極基材中に存在して、電極の多孔性を維持することができ、ガス拡散性を良好にしている。しかも本発明では従来の撥水層焼成温度より低い温度で処理できるという利点がある。燃料電池性能の低下は撥水層の撥水性および反応ガスの拡散性

に起因する所が多いが、本発明ではその両者を一挙に解決するものである。また前述のように、本発明の電極構造とすることにより、電極の構成層を減らすことができるので、燃料電池の性能に関して、電気抵抗と電圧損失を低減させるという効果も得られるものである。

4. 図面の簡単な説明

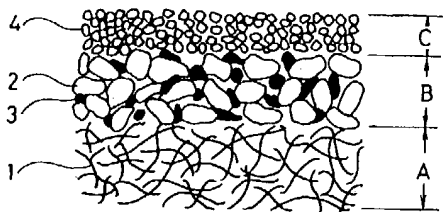
第1図は、ガス拡散電極の組織を表わす部分断面図、第2図は本発明による二種類の樹脂が含まれた電極組織の部分断面図、第3図は同じく焼成後の部分断面図、第4図は本発明により得られた単セル電池の電圧特性を示す線図である。

1…カーボン繊維、2…カーボン粉末、3…弗素樹脂、4…触媒担持カーボン粉末、5…高融点弗素樹脂、6…低融点弗素樹脂。

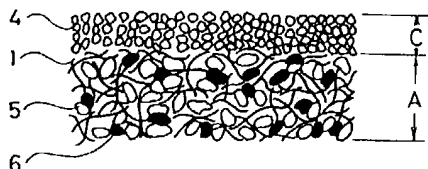
代理人弁理士 山 口



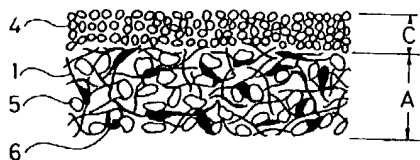
第 1 図



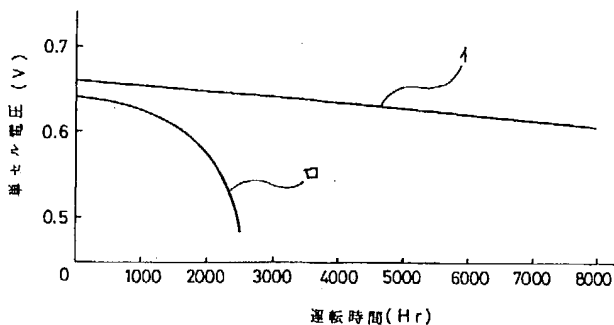
第 2 図



第 3 図



第 4 図



手続補正書(自発)

昭和59年 2 月 23 日

特許庁長官

若 杉 和 夫 殿

1. 事件の表示

特願昭58-13348/

2. 発明の名称

燃料電池のガス拡散電極

3. 補正をする者
事件との関係

出願人

住 所

横浜市中区2丁目2番1号

名 称

株式会社富士電機研究所

住 所

川崎市川崎区田辺新田1番1号

4. 代理人

(523) 富士電機製造株式会社

住 所

川崎市川崎区田辺新田1番1号

氏 名

(7516) 弁理士 山口 巖

Tel. (044) 333-7111 (内線355)

(内線4564)

5. 補正指令の日付 昭和 年 月 日

6. 補正により増加する発明の数

7. 補正の対象

明細書の発明の詳細な説明の項

8. 補正の内容

別紙の通り

59.2.24

方式

補正の内容

1. 明細書第4頁第13行目に記載の「の一部A領域」とあるを削除する。
2. 明細書第4頁第14行目に記載の「含浸されている」の後に「(図において領域Aで表す)」を追加挿入する。
3. 明細書第6頁第5行目「本発明による」以下同頁第7行目「内蔵しているので、」までを次のとおり訂正する。
「本発明によるガス拡散電極では電極基材自体に撥水性をもたせているので、」
4. 明細書第8頁第7行目に記載の「の方法」とあるを削除する。

代理人弁理士 山 口 巖

